二準位原子による光散乱スペクトルにおける

Bloch-Siegert shift　I

森　　　　　弘

埼玉工大紀要

二準位原子による光散乱スペクトルにおける

Bloch-Siegert shift　I

森　　　弘

要　旨

Mollow の理論において，回転波近似への補正を調べる。
この補正（2次）による，スペクトルのずれが与えられる。
これは，スペクトルにおける Bloch-Siegert shift と考えられる。

二準位原子によって散乱されたスペクトルの理論的考察[1)]は，実験的確認[2)]もなされている。他方，古くから知られている Bloch-Siegert shift[3)]も実験的に確認[4)]されている。

これらは，回転波近似の限界付近の強度の入射光のときに結びつく。この論文では，スペクトルの中に回転波近似への補正項によって生じたピークの位置が調べられる。

モデル及び仮定（Markoff 仮定，他）は，全て Mollow の理論[1)]に従う。Mollow (の理論) は，量子化された電場と結合している二準位原子に周波数ωの強い光（自然減衰率，detuning に対して）が入射した場合，原子による散乱光の強度スペクトルが，分離する効果を示した。そのスペクトルは，4個の部分より成る。すなわち，ω の位置に存在するコヒーレント成分，同じ幅をもったインコヒーレント成分である。インコヒーレント成分のピークの位置は，ω，$\omega\pm\Omega$ (Ω: Rabi frequency) である。

エネルギー固有値 0 の基底状態 $|0\rangle_a$，エネルギー固有値 $\hbar\omega_0$の励起状態 $|1\rangle_a$からなる，原点に固定された二準位原子を考える。

相互作用ハミルトニアン

$$H_I(t)=-\boldsymbol{d}(t)\cdot\boldsymbol{E}(0,\ t)$$

$$= -\frac{1}{\sqrt{2}}\Big[a^{+}(t)\ \boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{E}^{(+)}(0,\ t)+a(t)\ \boldsymbol{\mu}^{*}\cdot\boldsymbol{E}^{(-)}(0,\ t)$$

$$+a^{+}(t)\ \boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{E}^{(-)}(0,\ t)+a(t)\ \boldsymbol{\mu}^{*}\cdot\boldsymbol{E}^{(+)}(0,\ t)\Big] \tag{1}$$

において，補正項は，$a^{+}(t)\ \boldsymbol{\mu}\cdot\boldsymbol{E}^{(-)}(0,\ t)+a(t)\ \boldsymbol{\mu}^{*}\cdot\boldsymbol{E}^{(+)}(0,\ t)$ である。

電気双極子モーメント $\boldsymbol{d}(t)=\boldsymbol{\mu}a^{+}(t)+\boldsymbol{\mu}^{*}a(t)$ において，$a(t)$，$\boldsymbol{\mu}$ は，それぞれ，原子の下降演算子，双極子行列要素である。全電場の正の周波数成分

$$\boldsymbol{E}^{(+)}(\boldsymbol{r},\ t)=\mathscr{E}(\boldsymbol{r},\ t)\ \hat{e}_0+i\left(\frac{\hbar}{V}\right)^{1/2}\sum_{k}\omega_k^{1/2}\hat{e}_k b_k(t)e^{ik\cdot r} \tag{2}$$

において，$\mathscr{E}(\boldsymbol{r},\ t)\ \hat{e}_0$は，古典的駆動場，$\omega_k$, $\hat{e}_k$, b_kは，それぞれ $\boldsymbol{k}$ で指定された電場のモードに対する角周波数，偏極ベクトル，消滅演算子である。これは，Mollow の理論に従い，自由電場の正の周波数成分 $\boldsymbol{E}_f^{(+)}(\boldsymbol{r},\ t)$ を用いて，

$$\boldsymbol{E}^{(+)}(\boldsymbol{r},\ t)=\boldsymbol{\varphi}(\boldsymbol{r})\left\{a\left(t-\frac{r}{c}\right)+a^{+}\left(t-\frac{r}{c}\right)\right\}+\boldsymbol{E}_f^{(+)}(\boldsymbol{r},\ t) \tag{3}$$

と書ける。ゆえに，その平均値は，

$$\langle\boldsymbol{E}^{(+)}(\boldsymbol{r},\ t)\rangle=\boldsymbol{\varphi}(\boldsymbol{r})\left\{\left\langle a\left(t-\frac{r}{c}\right)\right\rangle+\left\langle a^{+}\left(t-\frac{r}{c}\right)\right\rangle\right\}. \tag{4}$$

1次の場の相関関数[5]は，

$$G_{jk}^{(1)}(\boldsymbol{r}',\ t';\ \boldsymbol{r},\ t)\equiv\langle E_j^{(-)}(\boldsymbol{r}',\ t')\ E_k^{(+)}(\boldsymbol{r},\ t)\rangle$$

$$=\varphi_j(\boldsymbol{r}')\varphi_k(\boldsymbol{r})\left\{\left\langle a^{+}\left(t'-\frac{r'}{c}\right)a\left(t-\frac{r}{c}\right)\right\rangle\right.$$

$$+\left\langle a\left(t'-\frac{r'}{c}\right)a^{+}\left(t-\frac{r}{c}\right)\right\rangle+\left\langle a\left(t'-\frac{r'}{c}\right)a\left(t-\frac{r}{c}\right)\right\rangle$$

$$\left.+\left\langle a^{+}\left(t'-\frac{r'}{c}\right)a^{+}\left(t-\frac{r}{c}\right)\right\rangle\right\} \tag{5}$$

であり，j, k は，x, y, z 成分を表わす。

原子と駆動場が平衡にある場合を考える。

$$\langle a^{+}(t')a(t)\rangle=g^{(0)}(t-t') \tag{6}$$

$$\langle a(t')a(t)\rangle+\langle a^{+}(t')a^{+}(t)\rangle=g^{(1)}(t-t') \tag{7}$$

$$\langle a(t')a^{+}(t)\rangle=g^{(2)}(t-t') \tag{8}$$

この場合，関数 $G^{(1)}$も$\tau=t\text{-}t'$のみにより，$\boldsymbol{r}=\boldsymbol{r}'$のとき，

$$G_{jk}^{(1)}(\boldsymbol{r},\ t';\ \boldsymbol{r},\ t)=\varphi_j(\boldsymbol{r})\varphi_k(\boldsymbol{r})\sum_{l=0}^{2}g^{(l)}(t-t'). \tag{9}$$

Wiener-Khintchine の定理より，散乱場の強度スペクトルは，

$$I(\nu;\ \boldsymbol{r})\equiv\int_{-\infty}^{\infty}d\tau e^{i\nu\tau}\sum_j G_{jj}^{(1)}(\boldsymbol{r},\ 0;\ \boldsymbol{r},\ \tau) \tag{10}$$

従って，スペクトル原子相関関数 $\tilde{g}^{(l)}(\nu)$ を用いて，

$$I(\nu;\ \boldsymbol{r})=|\varphi(\boldsymbol{r})|^2\sum_{l=0}^{2}\tilde{g}^{(l)}(\nu), \tag{11}$$

$$\tilde{g}^{(l)}(\nu)\equiv\int_{-\infty}^{\infty}d\tau e^{i\nu\tau}g^{(l)}(\tau). \tag{12}$$

Mollow に従って，原子縮約密度演算子 $\rho_a(t)$ を定義する。$\rho_a(t)$ の方程式は，

$$\begin{aligned}\frac{d}{dt}\rho_a(t)=&\varkappa^{(0)}a\rho_a(t)a^{+}\\&+\left[\left\{\left(\frac{\varkappa^{(1)}}{2}-i\delta\omega^{(1)}\right)e^{2i\omega_0 t}a\rho_a(t)a-\left(\frac{\varkappa^{(0)}}{2}+i\delta\omega^{(0)}\right)a^{+}a\rho_a(t)\right.\right.\\&\left.\left.-i\delta\omega^{(2)}aa^{+}\rho_a(t)\right\}+\left\{H.\ c.\right\}\right]\\&+i\left[-\omega_0a^{+}a+(a^{+}\lambda+a\lambda^{*})(\mathscr{E}(0,\ t)+\mathscr{E}^{*}(0,\ t)),\ \rho_a(t)\right].\end{aligned} \tag{13}$$

ここで，$\varkappa^{(1)}$は，原子の自然減衰率 $\varkappa^{(0)}$への補正項，$\delta\omega^{(1)}$，$\delta\omega^{(2)}$は，周波数シフト（Lamb シフト）$\delta\omega^{(0)}$への補正項，そして，$\lambda\equiv(\boldsymbol{\mu}\cdot\hat{e}_0)/\hbar\sqrt{2}$である。$\rho_a(t)$ を次の様に表現する。

$$\rho_a(t)=\bar{n}(t)a^{+}a+\alpha(t)a^{+}+\alpha^{*}(t)a+\bar{m}(t)aa^{+} \tag{14}$$

ここに，$\rho_a(t)$ の行列要素の従う方程式は，

$$\frac{d}{dt}\bar{n}(t)=-\varkappa^{(0)}\bar{n}(t)+i\lambda(\mathscr{E}(0,\ t)+\mathscr{E}^*(0,\ t))\alpha^*(t)$$
$$-i\lambda^*(\mathscr{E}^*(0,\ t)+\mathscr{E}(0,\ t))\alpha(t), \tag{15}$$

$$\frac{d}{dt}\alpha(t)=-\left(\frac{\varkappa^{(0)}}{2}+i\omega_0-i\delta\omega^{(2)}\right)\alpha(t)$$
$$+\left(\frac{\varkappa^{(1)}}{2}+i\delta\omega^{(1)}\right)e^{-2i(\omega_0-\delta\omega^{(0)})t}\alpha^*(t)$$
$$-i\lambda(\mathscr{E}(0,\ t)+\mathscr{E}^*(0,\ t))\left[\bar{n}(t)-\bar{m}(t)\right]. \tag{16}$$

又，$\bar{m}(t)=1-\bar{n}(t)$.

駆動場が次の式によって表わされる場合を考える。

$$\mathscr{E}(0,\ t)=\mathscr{E}_0e^{-i\omega t} \tag{17}$$

但し，ω は原子の共鳴周波数ω_0の近くにあり，$\mathscr{E}_0$は複素定数である。(15)，(16)式において，右辺の係数 $L(t)$（行列）は，全ての補正項を 0 とおいた右辺の係数 $L^{(0)}$からのずれ $L^{(1)}$, $L^{(2)}$を含んでいる。

$$L(t)=L^{(0)}+L^{(1)}(t)+L^{(2)}(t) \tag{18}$$

従って，

$$\bar{n}(t)=\bar{n}^{(0)}(t)+\bar{n}^{(1)}(t)+\bar{n}^{(2)}(t), \tag{19}$$

$$\alpha(t)=\alpha^{(0)}(t)+\alpha^{(1)}(t)+\alpha^{(2)}(t) \tag{20}$$

と置く。任意の時刻 $t=t'+\tau(\tau>0)$ における $\bar{n}(t)$, $\alpha(t)$, $\alpha^*(t)$, $\bar{m}(t)$ のそれぞれは，初期時刻 t'でのすべての 4 個の関数の一次結合である。
一例として，

$$\alpha(t'+\tau)=u_{\alpha n}(\tau;\ t')\bar{n}(t')+u_{\alpha\alpha}(\tau;\ t')\alpha(t')$$
$$+u_{\alpha\alpha^*}(\tau;\ t')\alpha^*(t')+u_{\alpha m}(\tau;\ t')\bar{m}(t'). \tag{21}$$

$u_{jk}(\tau;\ t')(j,\ k=\bar{n},\ \alpha,\ \alpha^*,\ \bar{m})$ は，

$$u_{jk}(\tau;\ t')=u_{jk}^{(0)}(\tau;\ t')+u_{jk}^{(1)}(\tau;\ t')+u_{jk}^{(2)}(\tau;\ t') \tag{22}$$

と置く。$\boldsymbol{v}(t)$（$\rho_a(t)$ の行列要素を成分とする 4 列の列ベクトル）の運動方

程式は,

$$\frac{d}{dt}\boldsymbol{v}^{(l)}(t)=\sum_{\substack{m,n\\(m+n=l)}} L^{(m)}(t)\boldsymbol{v}^{(n)}(t)\ (l,\ m,\ n=0,\ 1,\ 2). \tag{23}$$

(23)式は, 列ベクトルの成分が u_{jk}であった場合にも成り立ち, その場合には, $\boldsymbol{v}^{(l)}(t)$ が, $\boldsymbol{u}_k^{(l)}(\tau;\ t')$ に置き換わる。Laplace変換関数 $\hat{\boldsymbol{v}}^{(l)}(s)\equiv\mathscr{L}\boldsymbol{v}^{(l)}(t)$, $\hat{\boldsymbol{u}}_k^{(l)}(s;\ t')\equiv\mathscr{L}\boldsymbol{u}_k^{(l)}(\tau;\ t')$は, (23)式の Laplace 変換より

$$\hat{\boldsymbol{v}}^{(l)}(s)=\left[\ \frac{f_1^{(l)}(s)}{sf(s)}\ \frac{f_2^{(l)}(s+i\omega)}{(s+i\omega)f(s+i\omega)}\ \frac{f_3^{(l)}(s-i\omega)}{(s-i\omega)f(s-i\omega)}\ \frac{f_4^{(l)}(s)}{sf(s)}\right]^T, \tag{24}$$

$$\hat{\boldsymbol{u}}_k^{(l)}(s;\ t')=\left[\ \frac{f_{1k}^{(l)}(s;\ t')}{sf(s)}\ \frac{f_{2k}^{(l)}(s+i\omega;\ t')}{(s+i\omega)f(s+i\omega)}e^{-i\omega t'}\ \frac{f_{3k}^{(l)}(s-i\omega;\ t')}{(s-i\omega)f(s-i\omega)}e^{i\omega t'}\right.$$

$$\left.\frac{f_{4k}^{(l)}(s;\ t')}{sf(s)}\right]^T, \tag{25}$$

$$f(s)\equiv(s+\varkappa^{(0)})\ (s+z)\ (s+z^*)+\Omega^2\left(s+\frac{\varkappa^{(0)}}{2}\right), \tag{26}$$

$$\Omega\ \equiv2|\lambda||\mathscr{E}_0|, \tag{27}$$

$$z\ \equiv\frac{\varkappa^{(0)}}{2}+i\Delta\omega, \tag{28}$$

$$\Delta\omega\ \equiv\omega-\omega_0. \tag{29}$$

又, $f_j^{(l)}(s)$, $f_{jk}^{(l)}(s;\ t')$ の関数形は, 文献 6) による。
(24) 式より, $\rho_a(t)$ の行列要素の 0 次の定常解は,

$$\bar{n}_\infty^{(0)}\equiv\bar{n}^{(0)}(t\to\infty)=Res\left[\hat{v}_1^{(0)}(s),\ 0\right]$$

$$=\frac{f_1^{(0)}(0)}{f(0)}=\frac{\frac{1}{4}\Omega^2}{\frac{1}{2}\Omega^2+(\Delta\omega)^2+\frac{1}{4}(\varkappa^{(0)})^2}, \tag{30}$$

$$\alpha_\infty^{(0)}(t)\equiv\alpha^{(0)}(t\to\infty)=Res\left[\hat{v}_2^{(0)}(s),\ -i\omega\right]e^{-i\omega t}$$

$$=\frac{f_2^{(0)}(0)}{f(0)}e^{-i\omega t}=\frac{i\lambda\mathscr{E}_0z}{\frac{1}{2}\Omega^2+(\Delta\omega)^2+\frac{1}{4}(\varkappa^{(0)})^2}e^{-i\omega t}. \tag{31}$$

以下，スペクトル原子相関関数を調べる。0 次の原子相関関数の表現[7]

$$\langle a^{+}(t')a(t)\rangle = tr\left\{|0\rangle_{FF}\langle 0|\rho_a(t')\ a^{+}\mathrm{U}^{-1}(t,\ t')\ a\,\mathrm{U}(t,\ t')\right\} \tag{32}$$

（$\mathrm{U}(t,\ t')$：時間発展演算子）と期待値

$$\alpha(t) = tr\left\{|0\rangle_{FF}\langle 0|\rho_a(t')\mathrm{U}^{-1}(t,\ t')a\,\mathrm{U}(t,\ t')\right\} \tag{33}$$

との関係より，次式を得る。

$$g^{(0)}(\tau;\ t') \equiv \langle a^{+}(t')a(t'+\tau)\rangle = u_{aa}(\tau;\ t')\bar{n}(t') + u_{am}(\tau;\ t')\alpha^{*}(t') \tag{34}$$

補正項は，

$$\begin{aligned} g^{(1)}(\tau;\ t') &\equiv \langle a(t')a(t'+\tau)\rangle + \langle a^{+}(t')a^{+}(t'+\tau)\rangle \\ &= u_{an}(\tau;\ t')\alpha(t') + u_{aa^{*}}(\tau;\ t')\bar{m}(t') \\ &\quad + u_{a^{*}a}(\tau;\ t')\bar{n}(t') + u_{a^{*}m}(\tau;\ t')\alpha^{*}(t'), \end{aligned} \tag{35}$$

$$\begin{aligned} g^{(2)}(\tau;\ t') &\equiv \langle a(t')a^{+}(t'+\tau)\rangle \\ &= u_{a^{*}n}(\tau;\ t')\alpha(t') + u_{a^{*}a^{*}}(\tau;\ t')\bar{m}(t'). \end{aligned} \tag{36}$$

原子と場は，平衡とする。原子相関関数の Laplace 変換 $\hat{g}^{(l)}(s;\ t') \equiv \mathscr{L}\, g^{(l)}(\tau;\ t')$ を近似する。

$$\hat{g}^{(0)}(s;\ t') = \sum_{\substack{m,n \\ (m+n=0,1,2)}} \left\{\hat{u}_{aa}^{(m)}(s;\ t')\bar{n}_{\infty}^{(n)}(t') + \hat{u}_{am}^{(m)}(s;\ t')\alpha_{\infty}^{(n)*}(t')\right\} \tag{37}$$

$$\begin{aligned} \hat{g}^{(1)}(s;\ t') = \sum_{\substack{m,n \\ (m+n=0,1)}} &\left\{\hat{u}_{an}^{(m)}(s;\ t')\alpha_{\infty}^{(n)}(t') + \hat{u}_{aa^{*}}^{(m)}(s;\ t')\bar{m}_{\infty}^{(n)}(t')\right. \\ &\left. + \hat{u}_{a^{*}a}^{(m)}(s;\ t')\bar{n}_{\infty}^{(n)}(t') + \hat{u}_{a^{*}m}^{(m)}(s;\ t')\alpha_{\infty}^{(n)*}(t')\right\} \end{aligned} \tag{38}$$

$$\hat{g}^{(2)}(s;\ t') = \hat{u}_{a^{*}n}^{(0)}(s;\ t')\alpha_{\infty}^{(0)}(t') + \hat{u}_{a^{*}a^{*}}^{(0)}(s;\ t')\bar{m}_{\infty}^{(0)}(t') \tag{39}$$

$$(m,\ n = 0,\ 1,\ 2)$$

(24)，(25) 式において，

$$f(s) \approx \left(s + \frac{\varkappa^{(0)}}{2}\right)\left(s + \frac{3}{4}\varkappa^{(0)} - i\Omega\right)\left(s + \frac{3}{4}\varkappa^{(0)} + i\Omega\right) \tag{40}$$

$\tilde{g}^{(l)}(s;\ t')$ $(l=0,\ 1,\ 2)$ の極は,

$$s=-i\omega-ip,\ -i\omega-ip-s_j\ (j=0,\ +,\ -) \tag{41}$$

$$p=0,\ \pm2\omega,\ \pm2(\Delta\omega+\delta\omega^{(0)}), \tag{42}$$

$$s_0=-\frac{\kappa^{(0)}}{2},\ s_\pm=-\frac{3}{4}\kappa^{(0)}\pm i\Omega. \tag{43}$$

従って,スペクトル原子相関関数は,

$$\begin{aligned}\tilde{g}(\nu)&=\sum_{l=0}^{2}\tilde{g}^{(l)}(\nu)\\&=\sum_{p'}\left\{B_{coh}^{p'}2\pi\delta(\nu-\omega-p')+\frac{B_0^{p'}\kappa^{(0)}}{(\nu-\omega-p')^2+\frac{1}{4}(\kappa^{(0)})^2}\right.\\&\quad+\frac{B_-^{p'}\frac{3}{2}\kappa^{(0)}}{(\nu-\omega-p'-\Omega)^2+\frac{9}{16}(\kappa^{(0)})^2}\\&\quad\left.+\frac{B_+^{p'}\frac{3}{2}\kappa^{(0)}}{(\nu-\omega-p'+\Omega)^2+\frac{9}{16}(\kappa^{(0)})^2}\right\}\end{aligned} \tag{44}$$

$$(p'=0,\ 2\omega,\ \pm2(\Delta\omega+\delta\omega^{(0)}))$$

$p'=0$ には,Mollow の理論によるスペクトル及び,補正項によるスペクトルが含まれる。すなわち,回転波近似への 2 次の補正は,Mollow の 4 個のスペクトルに対し,同じ幅のスペクトルを, 4 個もたらす。ピークの位置は,$\nu=\omega$,$\omega\pm2(\Delta\omega+\delta\omega^{(0)})$,$3\omega$ であり,それぞれが,サイドバンドをもっている。$\delta\omega^{(0)}$と detuning とが並行してスペクトルを shift させる。共鳴光入射に対しては,$\delta\omega^{(0)}$がスペクトルを shift させる。$\delta\omega^{(0)}$は Lamb shift であり,量子電気力学の積分計算において,Stroud[8]に従って cutoff を入れた場合,

$$\delta\omega^{(0)}=-\frac{|\mu|^2\omega_0^3}{6\pi^2\hbar c^3}\ln\left|\frac{\omega_c}{\omega_0}\right| \tag{45}$$

である。$\nu=3\omega$ における Lorentz 関数は,Shirley[9]の二準位系における遷

移確率に対応する。Shirley による3ω 近傍のピークは，原点方向に shift している。この論文における計算が，この shift をもたらす可能性については，$B_0^{2\omega}$，$B_\pm^{2\omega}$を計算することによって明らかとなる。

参考文献

1) B.R. Mollow: Phys. Rev. 188 (1969) 1969.
B.R. Mollow and M.M.Miller: Ann. Phys. 52 (1969) 464.
2) F. Schuda, C.R. Stroud, Jr. and M.Hercher: J.Phys. B7 (1974) L198.
F.Y.Wu, R.E.Grove and S.Ezekiel: Phys. Rev. Lett. 35 (1975) 1426.
R.E.Grove, F.Y.Wu and S.Ezekiel: Phys. Rev. A35 (1977) 227.
3) F.Bloch and A.Siegert: Phys. Rev. 57 (1940) 522.
R.Hannaford, D.T.Pegg and G.W.Series: J.Phys. B6 (1973) L222.
G.W.Series: Phys. Rep. 43 (1978) 1.
4) C.Cohen-Tannoudji, C.J.Dupont-Roc and C.Fabre: J.Phys. B6 (1973) L218.
5) R.J.Glauber: Phys. Rev. 130 (1963) 2529.
R.J.Glauber: Phys. Rev. 131 (1963) 2766.
6) H.Mori: Master Thesis. Shinshu Univ. (1990).
7) M.Lax: Phys. Rev. 129 (1963) 2342.
8) C.R.Stroud Jr.: Phys. Rev. A3 (1971) 1044.
9) J.H.Shirley: Phys. Rev. 138 (1965) B979.